

## 明細書

## 有機電界発光素子および表示装置

## 5 技術分野

本発明は、有機電界発光素子および表示装置に関し、特には緑色に発光する有機電界発光素子およびこれを用いた表示装置に関する。

## 10 背景技術

1987年にEastman Kodak社のTangらが、低電圧駆動、高輝度発光が可能なアモルファス発光層を有する積層構造の有機薄膜電界発光素子を発表して以来、ブラウン管(CTR)に代わる表示装置として、有機電界発光素子を用いた表示装置の研究、開発が盛に行われている。有機電界発光素子は、陽極と陰極との間に有機材料からなる発光層を狭持してなる自発光型の表示素子であり、これを用いた表示装置は低消費電力での駆動によるフラット表示が可能となる。

このような表示装置においてフルカラーディスプレイを実現する上では、発光効率、色純度、および信頼性の高い三原色(赤色、緑色、青色)の発光材料を用いることが不可欠である。これらのうち緑色の発光材料は、前述のTangらの発表以来、最も古くから研究されており、発光効率を向上させる手法として下記に示す様々な手法が提案されている。

例えば、Alq<sub>3</sub>からなるホスト材料に、クマリン誘導体、キナクリドン誘導体、またはピラン誘導体をゲスト材料(ドーパン

ト)として添加した発光材料を用いて発光層を構成する素子構造が提案されている (J. Appl. Phys. (1989年), 65卷, 3610頁参照)。そして、これまでにおいては、Alq<sub>3</sub>にDMA (N,N'-Dimethyl-quinacridone) をドープして発光層とした素子構造において、発光効率 6~8 Cd/A、半減寿命 7000~8000 h (初期輝度約 1400 Cd/m<sup>2</sup>) の達成が報告されている (Appl. Phys. Lett. (1997年), 70卷, 1665頁参照)。

また、イリジウム (Ir) 錫体をドーパントとして用いて発光層を構成する発光素子が提案されている (Appl. Phys. Lett. (1999年), 75卷, 5頁参照)。具体的には、ドーパントとホストとして、Ir (ppy)<sub>3</sub> (Tris[2-(2-pyridinyl)phenyl-C,N]-iridium; Tris(2-phenylpyridine)iridium (III)) とCBP (4,4'-Bis(carbazol-9-yl) biphenyl) の組合せが広く研究されており、発光効率は 20~40 Cd/A と非常に高い値が報告されており、発光効率 19 Cd/A、半減寿命 4000 h (初期輝度 1000 Cd/m<sup>2</sup>) の達成が報告されている (Appl. Phys. Lett. (2002年), 81卷, 162頁参照)。

さらにまた、アリールアミン系化合物を用いた素子についても開示されており、発光効率は 2~6 Cd/A 程度、半減寿命も最高で 700 h (初期輝度 300 Cd/m<sup>2</sup>) と報告されている (特開平 8-199162 号公報参照)。

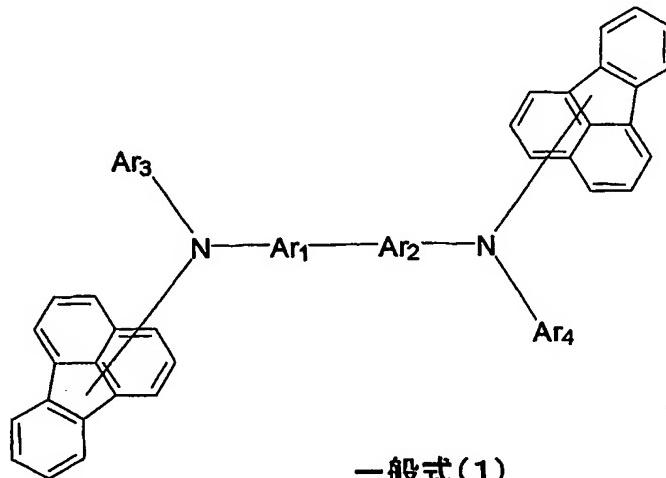
そして、フルオランテン系化合物およびそれを用いた素子が開示されている (特開平 10-189247 号公報, 特開 2002-69044 号公報参照)。

しかしながら、上述した何れの構成の有機電界発光素子であつても、表示装置の実現に要求されている半減寿命 1 万時間以上（初期輝度  $1000 \sim 1500 \text{ Cd/m}^2$ ）の達成には至っておらず、発光効率および信頼性の点で未だに充分でない。

そこで本発明は、発光効率および色純度が十分に良好で、かつ信頼性のより高い緑色の有機電界発光素子、およびこれを用いてなる表示装置を提供することを目的とする。

### 発明の開示

以上のような目的を達成するための本発明の有機電界発光素子は、陽極と陰極との間に狭持された発光層が、下記一般式（1）に示すフルオランテン誘導体を含有している緑色発光素子であることを特徴としている。



この一般式（1）中における 2 つのフルオランテンの各置換部位は、それぞれ独立に水素、炭素原子数 1 以上 6 以下（1～6）のアルキル基（シクロアルキル基を含む）、炭素原子数 1 以上 6 以下（1～6）のアルコキシ基、または炭素原子数 6 以上 12 以

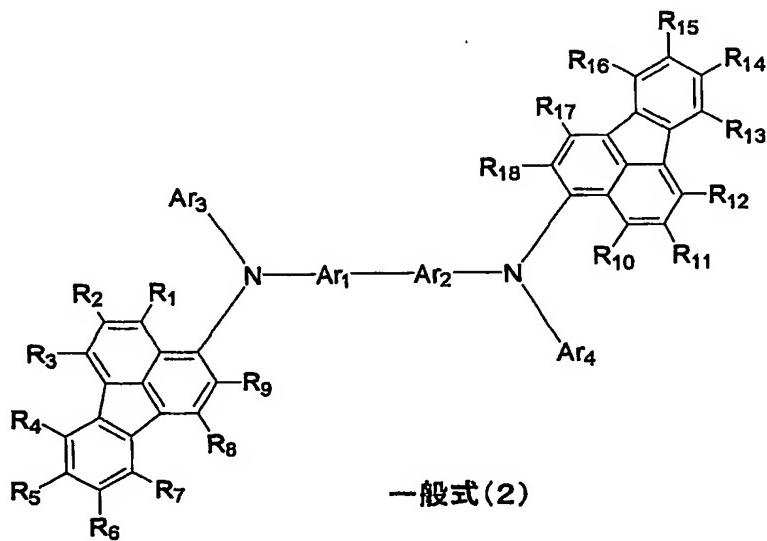
下(6~12)のアリール基で置換されて良い。

また、一般式(1)中のAr<sub>1</sub>およびAr<sub>2</sub>は、それぞれ独立に炭素原子数6以上22以下(6~22)のアリーレン基を示している。

さらに、一般式(1)中のAr<sub>3</sub>およびAr<sub>4</sub>は、それぞれ独立に炭素原子数6以上16以下(6~16)のアリール基を示している。

そして、上記各アリール基およびアリーレン基の1つまたは複数の水素は、炭素原子数1以上6以下(1~6)のアルキル基(シクロアルキル基を含む)またはアルコキシ基でそれぞれ置換されても良い。

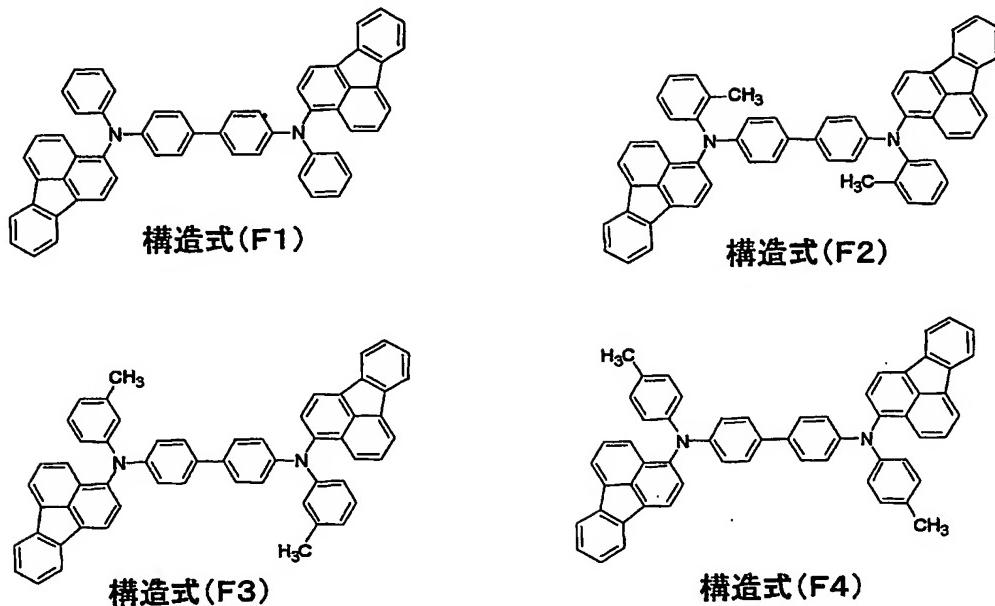
上記一般式(1)のフルオランテン誘導体の一例としては、下記一般式(2)のフルオランテン誘導体を示すことができる。



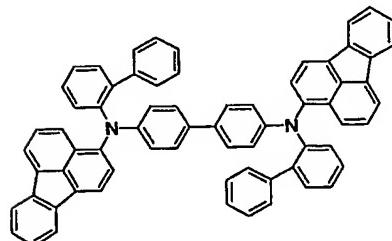
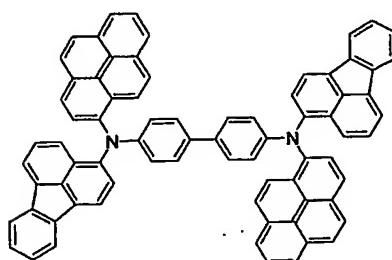
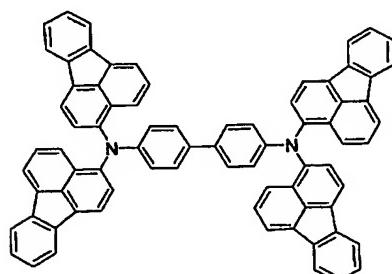
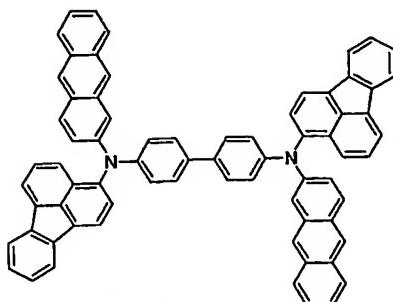
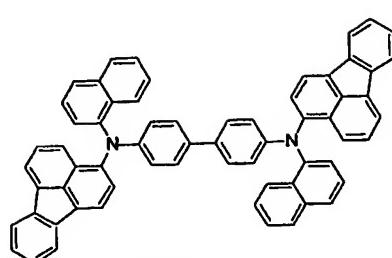
この一般式(2)中における2つのフルオランテンにおける各置換部位R<sub>1</sub>~R<sub>18</sub>は、それぞれ独立に水素、炭素原子数1以上6以下(1~6)のアルキル基(シクロアルキル基を含む)、炭素

原子数 1 以上 6 以下 (1 ~ 6) のアルコキシ基、または炭素原子数 6 以上 12 以下 (6 ~ 12) のアリール基を示している。尚、上記一般式 (1) のフルオランテン誘導体は、フルオランテンにおける窒素との結合位置が、一般式 (2) の位置に限定されるこ  
5 とはない。

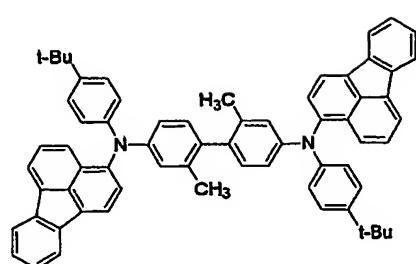
以上のような一般式 (1) で示されるフルオランテン誘導体の具体的な一例としては、例えば下記構造式 (F 1) に示すように、上記一般式 (2) における  $A_{r_1}$ ,  $A_{r_2}$  のアリーレン基をフェニレン基、 $A_{r_3}$ ,  $A_{r_4}$  のアリール基をフェニル基とした化合物を  
10 例示できる。そして、下記構造式 (F 2) ~ (F 4) に示すように、 $A_{r_3}$ ,  $A_{r_4}$  のフェニル基の各置換部位を、さらにメチル基で置換した化合物であっても良い。尚、 $A_{r_3}$ ,  $A_{r_4}$  のフェニル基の各置換部位は、炭素数 6 以下のアルキル基またはアルコキシ基であれば、2箇所以上がこれらの基（例えばメチル基）で置換  
15 されていても良い。



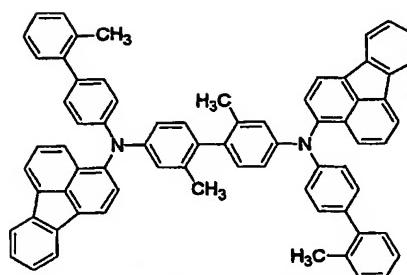
また、下記構造式(F5)～(F9)に示すように、一般式(1)中の $A_{r_3}$ ,  $A_{r_4}$ は、それぞれが独立に炭素原子数16以下（好みしくは14以下）のアリール基であれば、縮環式芳香族炭化水素基であっても良い。尚、 $A_{r_3}$ ,  $A_{r_4}$ のアリール基は、炭素原子数16以下（好みしくは14以下）のアリール基として、ビフェニル基も含むこととする。このビフェニル基は、構造式(F9)に示すように、末端のフェニル基がオルト位に結合している構造の他、末端のフェニル基がメタ位またはパラ位に結合していても良い。



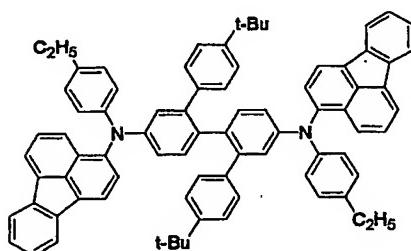
またさらに下記構造式(F10)～(F12)に示すように、一般式(1)中のAr<sub>1</sub>, Ar<sub>2</sub>のアリーレン基およびAr<sub>3</sub>, Ar<sub>4</sub>のアリール基における各置換部位のそれぞれが、炭素数6以下のアルキル基で置換されていても良い。尚、Ar<sub>1</sub>, Ar<sub>2</sub>のアリーレン基およびAr<sub>3</sub>, Ar<sub>4</sub>のアリール基における各置換部位は、炭素数6以下のアルコキシ基で置換されても良い。また、Ar<sub>1</sub>, Ar<sub>2</sub>のアリーレン基およびAr<sub>3</sub>, Ar<sub>4</sub>のアリール基における2箇所以上の置換部位が、これらの基で置換されていても良い。



構造式(F10)

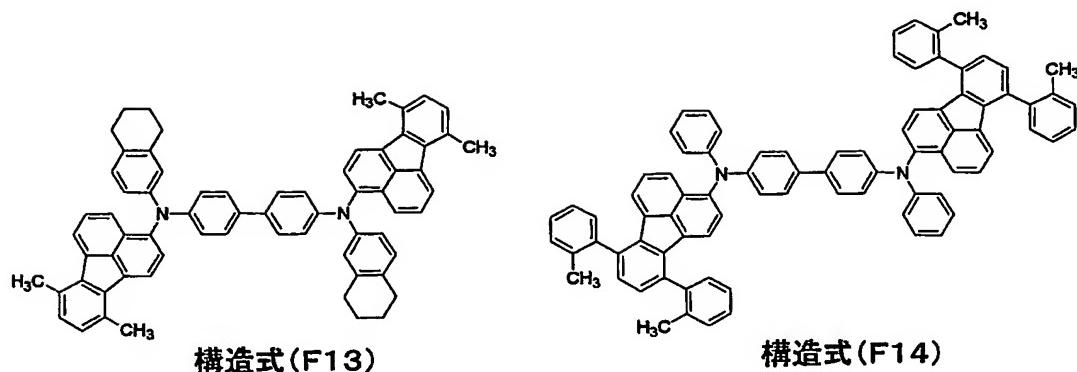


構造式(F11)

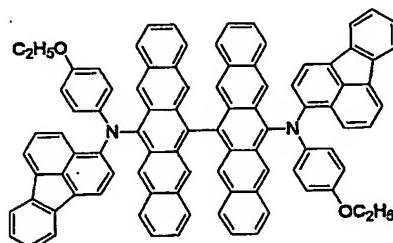
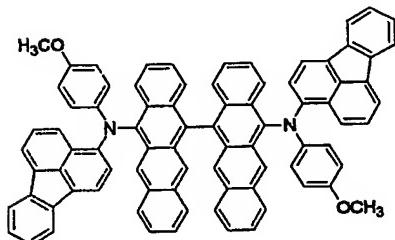
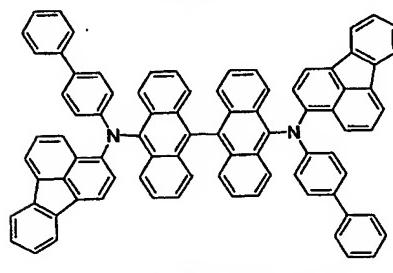
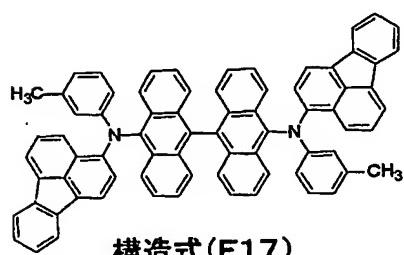
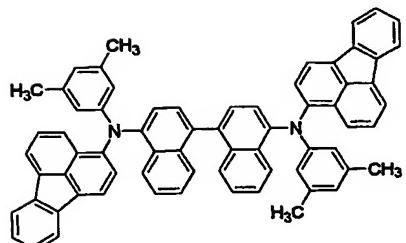
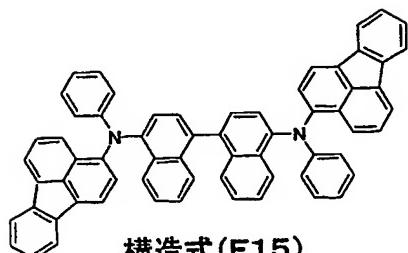


構造式(F12)

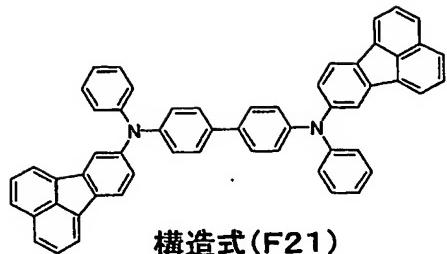
また、一般式(1)で示されるフルオランテン誘導体の具体的な一例としては、下記構造式(F13)～(F14)に示すように、2つのフルオランテンの各置換部位が、炭素原子数6以下の5 アルキル基、または炭素原子数12以下のアリール基で置換されても良い。尚、2つのフルオランテンの各置換部位は、炭素数6以下であればアルコキシ基で置換されても良い。また特に構造式(F14)に示すように、2つのフルオランテンの各置換部位がアリール基で置換されている場合、このアリール基が、さらに炭10 素原子数6以下のアルキル基(またはアルコキシ基)で置換されても良い。



さらに、一般式（1）で示されるフルオランテン誘導体の具体的な一例として、下記構造式（F15）～（F20）に示すように、Ar<sub>1</sub>、Ar<sub>2</sub>のアリーレン基が、炭素原子数22以下（好ましくは16以下）の縮環式芳香族炭化水素基である場合が例示される。



また、上記一般式(1)のフルオランテン誘導体は、フルオランテンにおける窒素との結合位置が、上記構造式(F1)～(F20)で示した位置に限定されることはなく、例えば下記構造式(F21)に示す位置であっても良く、さらに他の位置であっても良い。また、2つのフルオランテンがそれぞれ異なる位置で窒素に結合していても良い。



以上構造式(F1)～構造式(F21)で示した構造の他にも、本発明の有機電界発光素子の発光層に含まれるフルオランテン誘導体は、上記一般式(1)を満足する構造で有れば良く、例えば一般式(1)における $A_{r_1}$ と $A_{r_2}$ 、さらに $A_{r_3}$ と $A_{r_4}$ が異なる基であっても良い。また、一般式(1)における2つのフルオランテンの各置換部位がそれぞれ異なる基であっても良い。

このような構成の発光層を備えた有機電界発光素子では、上記一般式(1)に示すフルオランテン誘導体を発光層に含有させたことにより、初期輝度が高く減衰率が低い緑色の波長領域の発光が得られる。

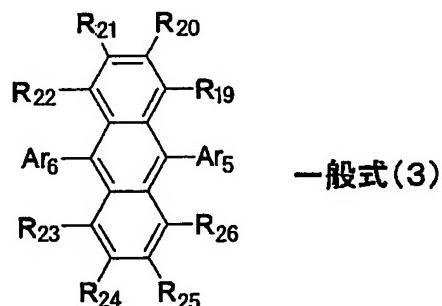
また特に、構造式(F1)～構造式(F21)の具体例に代表される上記一般式(1)のフルオランテン誘導体は、上述したように一般式(1)における $A_{r_1}$ および $A_{r_2}$ が、炭素原子数6以上14以下(6～14)のアリーレン基であることが好ましい。また、 $A_{r_3}$ および $A_{r_4}$ は、炭素原子数6以上14以下(6～14)のアリール基であることが好ましい。具体的には、一般式(1)に示すフルオランテン誘導体のアリール基およびアリーレン基は、それぞれがベンゼン、ナフタレン、アントラセン、およびビフェニルのうちの1つから誘導されることが好ましい。

このように一般式(1)における $A_{r_1}$ 、 $A_{r_2}$ 、 $A_{r_3}$ 、 $A_{r_4}$ における炭素原子数および共役環の大きさを制限することによ

り、波長領域の短波長化および長波長化が防止される。また特に、  
 Ar<sub>3</sub>, Ar<sub>4</sub>における炭素原子数を制限することにより、一般式  
 (1)で示される分子全体の歪みによる発光波長領域の短波長化  
 が防止される。これにより、色純度の高い緑色の波長領域の発光  
 が得られることになる。

尚、上述した構成のフルオランテン誘導体は、発光層内に 50  
 体積%よりも低い割合で、すなわちゲストとして導入されている  
 こととする。

そして、このようなフルオランテン誘導体を含有する発光層には、フルオランテン誘導体の吸収スペクトルに対して、蛍光スペクトルが重なりを有する有機材料が含有されていることとする。  
 吸収スペクトルと蛍光スペクトルとの重なりは、大きいほど好ましく、これにより有機材料の蛍光スペクトルのエネルギーが、フルオランテン誘導体に移動し易くなり、発光効率が向上するから  
 である。このような有機材料は、下記一般式(3)に示すアリールアントラセン誘導体からなる。

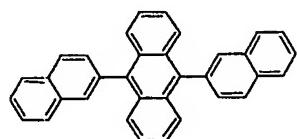


この一般式(3)中のR<sub>19</sub>～R<sub>26</sub>は、それぞれ独立に水素、  
 炭素原子数1以上6以下(1～6)のアルキル基(シクロアルキ  
 ル基を含む)またはアルコキシ基を示している。

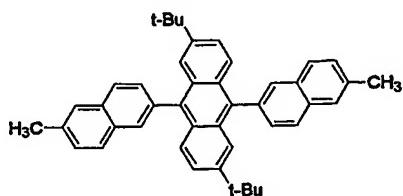
また、一般式(3)中のAr<sub>5</sub>およびAr<sub>6</sub>は、それぞれ独立

に炭素原子数 6 以上 60 以下 (6 ~ 60) のアリール基または環集合アリール基を示している。そして、これらのアリール基または環集合アリール基の 1 つまたは複数の水素は、炭素原子数 1 以上 12 以下 (1 ~ 12) のアルキル基(シクロアルキル基を含む)、  
 5 アルコキシ基、炭素原子数 60 以下の置換または無置換のエテニル基で置換されても良い。尚、置換エテニル基は、エテニル基の水素の一部または全部を、アルキル基、アリール基などの炭化水素基で置換した基であり、全体の炭素原子数が 60 以下で有ればよい。

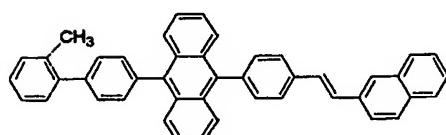
10 このようなアリールアントラセン誘導体の具体例の一部を、下記構造式 (A1) ~ 構造式 (A13) に示す。



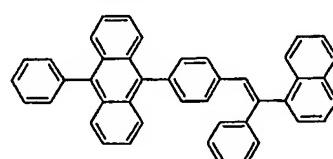
構造式(A1)



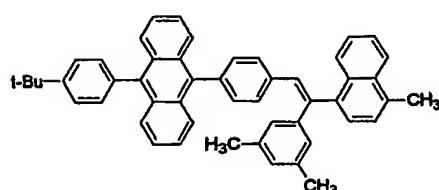
構造式(A2)



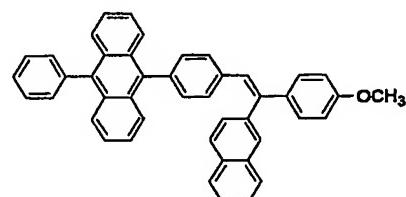
構造式(A3)



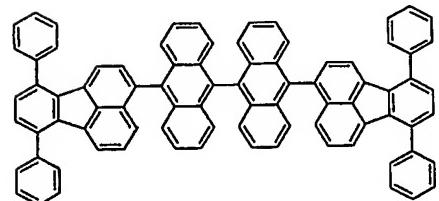
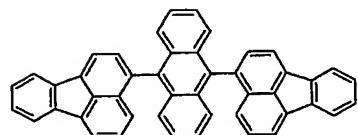
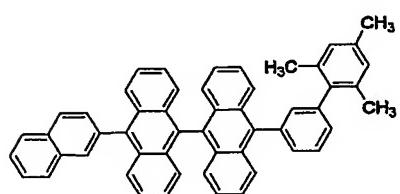
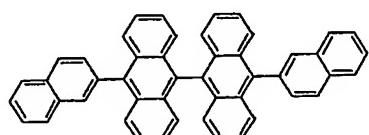
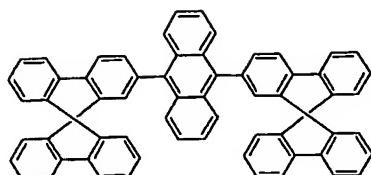
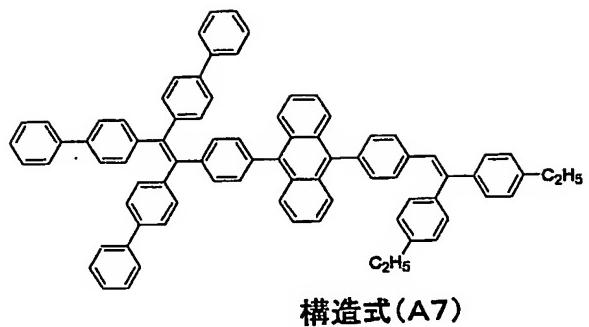
構造式(A4)



構造式(A5)



構造式(A6)



以上構造式(A1)～構造式(A13)で示した構造の他にも、本発明の有機電界発光素子の発光層に含まれるアリールアント

ラセン誘導体は、上記一般式(3)を満足する構造で有れば良い。

また、本発明は、上述した発光層を陽極と陰極との間に狭持してなる有機電界発光素子を基板上に複数配列して設けた表示装置でもある。

5 このような表示装置では、上述したように、輝度および色純度が高くかつ減衰率が低い有機電界発光素子を緑色発光素子として用いて表示装置が構成されるため、他の赤色発光素子および青色発光素子と組み合わせることで、色再現性の高いフルカラー表示が可能になる。

10 以上説明したように本発明の有機電界発光素子によれば、上記一般式(1)に示すフルオランテン誘導体を発光層に含有させたことで、色純度が高く、また発光効率が良好で、さらに初期輝度が高くかつ減衰率が低いことにより信頼性の高い緑色の波長領域の発光が実現可能となる。

15 そして、本発明の表示装置によれば、上述したように色純度、発光効率、および信頼性の高い緑色発光素子となる有機電界発光素子と共に、赤色発光素子および青色発光素子を1組にして画素を構成することにより、色再現性の高いフルカラー表示が可能になる。

20

#### 図面の簡単な説明

第1図は、実施形態の有機電界発光素子および表示装置の要部断面構成図である。

25 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明の有機電界発光素子およびこれを用いた表示装置

の構成を図面に基づいて詳細に説明する。第1図は、本発明の有機電界発光素子およびこれを用いた表示装置を模式的に示す断面図である。

この図に示す表示装置1は、基板2と、この基板2上に設けられた有機電界発光素子3とを備えている。有機電界発光素子3は、基板2上に、下部電極4、有機層5および上部電極6を順次積層してなり、基板2側または上部電極6側から発光を取り出す構成となっている。尚、この図においては、基板2上に1画素分の有機電界発光素子3を設けた構成を示しているが、この表示装置1は、複数の画素を備え、複数の有機電界発光素子3が各画素に配列形成されていることとする。

次に、この表示装置1を構成する各部の詳細な構成を、基板2、下部電極4および上部電極6、有機層5の順に説明する。

基板2は、ガラス、シリコン、プラスチック基板、さらにはTFT (thin film transistor) が形成されたTFT基板などからなり、特にこの表示装置1が基板2側から発光を取り出す透過型である場合には、この基板2は光透過性を有する材料で構成されることとする。

また基板2上に形成された下部電極4は、陽極または陰極として用いられるものである。尚、図面においては、代表して下部電極4が陽極である場合を例示した。

この下部電極4は、表示装置1の駆動方式によって適する形状にパターンニングされていることとする。例えば、この表示装置1の駆動方式が単純マトリックス方式である場合には、この下部電極4は例えばストライプ状に形成される。また、表示装置1の駆動方式が画素毎にTFTを備えたアクティブマトリックス方

式である場合には、下部電極4は複数配列された各画素に対応させてパターン形成され、同様に各画素に設けられたTFTに対して、これらのTFTを覆う層間絶縁膜に形成されたコンタクトホール（図示省略）を介してそれぞれが接続される状態で形成されることとする。  
5

一方、下部電極4上に有機層5を介して設けられる上部電極6は、下部電極4が陽極である場合には陰極として用いられ、下部電極4が陰極である場合には陽極として用いられる。尚、図面においては、上部電極6が陰極である場合が示されている。

10 そして、この表示装置1が、単純マトリックス方式である場合には、この上部電極6は例えば下部電極4のストライプと交差するストライプ状に形成され、これらが交差して積層された部分が有機電界発光素子3となる。また、この表示装置1が、アクティブマトリックス方式である場合には、この上部電極6は、基板2  
15 上の一面を覆う状態で成膜されたベタ膜状に形成され、各画素に共通の電極として用いられることとする。尚、表示装置1の駆動方式としてアクティブマトリックス方式を採用する場合には、有機電界発光素子3の開口率を確保するために、上部電極6側から発光を取り出す上面発光型とすることが望ましい。

20 ここで、下部電極4（または上部電極6）を構成する陽極材料としては、仕事関数がなるべく大きなものがよく、たとえば、ニッケル、銀、金、白金、パラジウム、セレン、ロジウム、ルテニウム、イリジウム、レニウム、タンクスチタン、モリブデン、クロム、タンタル、ニオブやこれらの合金、酸化物、あるいは、酸化錫、ITO、酸化亜鉛、酸化チタン等が好ましい。  
25

一方、上部電極6（または下部電極4）を構成する陰極材料と

しては仕事関数がなるべく小さなものがよく、例えば、マグネシウム、カルシウム、インジウム、リチウム、アルミニウム、銀やこれらの合金が好ましい。

ただし、この有機電界発光素子 3 で生じた発光を取り出す側となる電極は、上述した材料の中から光透過性を有する材料を適宜選択して用いることとし、特に、有機電界発光素子 3 の発光の波長領域において 30 % より多くの光を透過する材料が好ましく用いられる。

例えば、この表示装置 1 が、基板 2 側から発光を取り出す透過型である場合、陽極となる下部電極 4 として ITO のような光透過性を有する陽極材料を用い、陰極となる上部電極 6 としてアルミニウムのような反射率の良好な陰極材料を用いる。

一方、この表示装置 1 が、上部電極 6 側から発光を取り出す上面発光型である場合、陽極となる下部電極 4 としてクロムや銀合金のような陽極材料を用い、陰極となる上部電極 6 としてマグネシウムと銀 (MgAg) との合金のような光透過性を有する陰極材料を用いる。ただし、上部電極 6 の膜厚を緑色波長領域における光透過率が 30 % 程度になるようにして、次に説明する有機層 5 および下部電極 4 との間で共振器構造を最適化して取り出した光の強度が高められるように設計されることが好ましい。

そして、上述した下部電極 4 および上部電極 6 に狭持される有機層 5 は、陽極側（図面においては下部電極 4 側）から順に、正孔輸送層 501、発光層 503、電子輸送層 505 を積層してなる。

さらに、正孔輸送層 501 としては、NPB  
(N,N'-Di(naphthalen-1-yl)-N,N'-diphenyl-benzidine)、TP

TE (*N,N'*-diphenyl- *N,N'*-bis[*N*-(4-methylphenyl)-  
-*N*-phenyl-(4-aminophenyl)]-1,1'-biphenyl-4,4'-diamine)  
などのトリフェニルアミン2量体、3量体、4量体、スターバー  
スト型アミンなどの公知の材料を単層もしくは積層して、或いは  
5 混合して用いることができる。

そして、この正孔輸送層501上に設けられる発光層503が、  
本発明に特徴的な層であり、上記一般式(1)および上記構造式  
(F1)～構造式(F21)を用いて説明したフルオランテン誘  
導体をゲストとし含有している。

10 このようなフルオランテン誘導体は、高いホール輸送性を有す  
る。このため、発光層中の濃度を50体積%以上の高濃度にする  
と、後述の電子輸送層505からの発光が観測されるようになり、  
発光層503自体での発光効率が低下する。したがって、フルオ  
ランテン誘導体は、発光層503内にゲストとして導入され、発  
15 光層503中におけるフルオランテン誘導体の濃度は、1体積%  
以上50体積%未満であることが望ましく、好ましくは1体積%  
以上20体積%以下、さらに好ましくは1体積%以上10体積%  
以下の濃度である。

また、発光層503には、上述したフルオランテン誘導体と共に、  
20 このフルオランテン誘導体の吸収スペクトルに対して蛍光ス  
ペクトルが重なりを有する有機材料として、上記一般式(3)お  
よび上記構造式(A1)～構造式(A13)を用いて説明したア  
リールアントラセン誘導体がホストとして含有されている。

そして、発光層503上に設けられる電子輸送層505には、  
25 A1q3、オキシジアゾール、トリアゾール、ベンズイミダゾー  
ル、シロール誘導体などの公知の材料を使用することができる。

以上説明した構成の他にも、ここでの図示は省略したが、陽極となる下部電極4と正孔輸送層501との間に、正孔注入層を挿入しても良い。正孔注入層としてはPPV(ポリフェニレンビニレン)などの伝導性ポリマー、フタロシアニン銅、スターバースト型アミン、トリフェニルアミン2量体、3量体、4量体などの公知の材料を単層もしくは積層して或いは混合して用いることができる。このような正孔注入層を挿入することにより正孔の注入効率が上がるため、より好ましい。

さらに、ここでの図示は省略したが、電子輸送層505と陰極(上部電極6)の間に、電子注入層を挿入しても良い。電子注入層としては、酸化リチウム、フッ化リチウム、ヨウ化セシウム、フッ化ストロンチウムなどのアルカリ金属酸化物、アルカリ金属ハロゲン化物、アルカリ土類金属酸化物、アルカリ土類金属ハロゲン化物を用いることができる。このような電子注入層を挿入することにより電子の注入効率が上がるため、より好ましい。

上記述べたような材料による積層構造の有機層5の形成には、周知の方法にて合成された各有機材料を用いて、真空蒸着やスピノコートなどの周知の方法を適用することができる。

そして、ここでの図示は省略したが、このような構成の有機電界発光素子3を備えた表示装置1においては、大気中の水分や酸素等による有機電界発光素子3の劣化を防止するために、有機電界発光素子3を覆う状態でフッ化マグネシウムや窒化シリコン膜(SiNx)等からなる封止膜を基板2上に形成したり、有機電界発光素子3に封止缶を被せて中空部を乾燥した不活性ガスでバージするか真空に引いた状態にすることが望ましい。

また、ここでの図示は省略したが、このような構成の有機電界

発光素子3を備えた表示装置1においては、この有機電界発光素子3を緑色発光素子とし、これと共に赤色発光素子および青色発光素子を各画素に設け、これら3画素をサブピクセルとして1画素を構成し、基板2上にこれらの3画素を1組とした各画素を複数配列することで、フルカラー表示を行うものとしても良い。  
5

以上説明した構成の有機電界発光素子3では、上記一般式(1)に示すフルオランテン誘導体および上記一般式(3)に示すアリールアントラセン誘導体を発光層503に含有させたことにより、発光効率が高く、かつ減衰率が低くて信頼性の高い、色純度の良好な緑色の波長領域の発光が得られる。そして、このような有機電界発光素子3を備えた表示装置1は、この有機電界発光素子3と共に、赤色発光する有機電界発光素子および青色発光する有機電界発光素子と組み合わせることで、色表現性の高いフルカラー表示を行うことが可能になる。  
10  
15

### 実施例

以下、本発明の具体的な実施例1～14、およびこれらの実施例に対する比較例1～3、さらには各実施例および比較例で作製した有機電界発光素子の評価結果を説明する。

#### 20 <実施例1>

膜厚が190nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板(ITO基板)を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。このITO基板を乾燥後、さらにUV／オゾン処理を10分間行った。次いで、このITO基板を蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $1.4 \times 10^{-4}$ Paに減圧した。  
25

そして先ず、ITO透明電極上に、N,N'-Diphenyl-N,N'-bis(4'-(N,N-bis(naphtha-1-yl)amino)-biphenil-4-yl)-benzidineを、蒸着速度0.2nm/secで65nmの厚さに蒸着し、正孔注輸送層を形成した。次いで、上記構造式(A1)に示す9,10-di-(2-naphthyl)anthracene(ADN)をアリールアントラセン誘導体からなるホストとし、上記構造式(F1)に示すN,N'-di(3-fluoranthenyl)-N,N'-di(3-phenyl)benzidineをフルオランテン誘導体からなるゲストとし、それぞれを異なる蒸着源から、全蒸着速度約0.2nm/secで35nmの厚さに共蒸着し、ゲスト濃度が5体積%の発光層を形成した。次に、A1q3を蒸着速度0.2nm/secで15nmの厚さに蒸着し、電子輸送層を形成した。その上に、フッ化リチウム(LiF)を0.1nmの厚さに蒸着し、さらにマグネシウムと銀をそれぞれ異なる蒸着源から、全蒸着速度約0.4nm/secで70nmの厚さに共蒸着(原子比95:5)して陰極を形成した。これにより、基板側から光を取り出す下面発光型の有機電界発光素子を作製した。

#### <実施例2～4>

上述した実施例1の有機電界発光素子の作製手順において、発光層中における構造式(F1)のフルオランテン誘導体からなるゲスト濃度を、下記表1に示すように、10体積%(実施例2)、20体積%(実施例3)、40体積%(実施例4)としたこと以外は、実施例1と同様にして下面発光型の有機電界発光素子を作製した。

	ゲスト濃度	ホスト	輝度 [Cd/m <sup>2</sup> ]	色度 (R,G,B)	ELmax [nm]	電圧 [V]	発光効率 [Cd/A]	電力効率 [lm/W]	減衰率 100h後
実施例1	構造式(F1) : 5%	構造式(A1)	2210	(0.358,0.598)	532	5.33	17.68	10.42	10%
実施例2	" : 10%	"	1940	(0.397,0.590)	537	4.83	15.52	10.11	14%
実施例3	" : 20%	"	1570	(0.393,0.583)	539	4.56	12.56	8.66	14%
実施例4	" : 40%	"	1090	(0.411,0.570)	544	4.56	8.72	6.01	18%
比較例1	クマリン6 : 1%	Alq3	1225	(0.275,0.605)	523	5.70	9.80	5.40	25%
比較例2	構造式(F1) : 5%	"	1230	(0.437,0.541)	554	5.34	9.84	5.79	6%
実施例5	実施例1の共振器構造		2580	(0.285,0.677)	533	4.96	20.60	13.10	*9%
比較例3	比較例1の共振器構造		1780	(0.250,0.680)	525	5.00	14.10	8.84	*23%

\*実施例5、比較例3の減衰率は1000時間後

### <比較例1>

上述した実施例1の有機電界発光素子の作製手順において、発光層中における構造式(F1)のフルオランテン誘導体からなる  
5 ゲストに換えて、クマリン6：

3-(2-Benzothiazolyl)-7-diethylaminocoumarinを用いたこと、  
さらに発光層中における構造式(A1)のアリールアントラセン  
誘導体(ADN)からなるホストに換えて、Alq3を用いたこと以外は、実施例1と同様にして透過型の有機電界発光素子を作  
10 製した。尚、ゲスト濃度は1体積%とした。

### <比較例2>

上述した実施例1の有機電界発光素子の作製手順において、発光層中における構造式(A1)のアリールアントラセン誘導体からなるホストに換えて、Alq3を用いたこと以外は、実施例1と同様にして透過型の有機電界発光素子を作製した。尚、ゲスト濃度は5体積%とした。

### <評価結果>

各実施例1～4および比較例1, 2で作製した透過型の有機電

界発光素子の評価として、これらの素子を  $12.5 \text{ mA/cm}^2$  で直流駆動した場合の発光特性の測定と、さらに窒素雰囲気中ににおいて  $12.5 \text{ mA/cm}^2$  での 100 時間の連続駆動後の減衰率の測定を行った。この結果を、上記表 1 に合わせて示した。

5 表 1 に示した結果から、フルオランテン誘導体 [構造式 (F 1)] とアリールアントラセン誘導体 (A D N) [構造式 (A 1)] とを用いて発光層を構成した実施例 1 の有機電界発光素子では、電流密度  $12.5 \text{ mA/cm}^2$  の直流駆動で輝度  $2210 \text{ Cd/m}^2$  の緑色発光が確認された。駆動電圧は 5.33 V、発光効率は 17.68 Cd/A、電力効率は 10.421 m/W であった。また、窒素気流中、電流密度  $12.5 \text{ mA/cm}^2$  での 100 時間連続駆動後の輝度の減衰率は 10 % だった。また、色度も (0.358, 0.598) であり、特に sRGB の緑色発光の標準値 (0.300, 0.600) に近い純度の高い緑色が得られた。

10 15 また、同様の材料を用いて発光層を構成した実施例 2 ~ 4 の有機電界発光素子においても、発光層におけるフルオランテン誘導体 [構造式 (F 1)] の濃度の上昇にともなって、発光効率が低下し減衰率は上昇するものの、色度は緑色の範囲で、発光効率は 8.72 Cd/A 以上が得られ、減衰率は 18 % 以下に抑えられている。

20 25 これに対して、比較例 1 の、発光層がクマリン 6 と A 1 q 3 からなる有機電界発光素子は、減衰率が 25 % と高いものであった。さらに、比較例 2 の、発光層のゲストにフルオランテン誘導体 [構造式 (F 1)] を用いたが、ホストに A 1 q 3 を用いた有機電界発光素子においても、実施例 1 の有機電界発光素子との比較において、輝度、発光効率、電力効率が低かった。また、最大

発光波長も長めであり、黄色に近い発光であった。

＜実施例 5＞

上述した実施例 1 の有機電界発光素子の作製手順において、膜厚が 190 nm の Ag 合金（反射層）上に 12.5 nm の ITO 透明電極を積層した陽極を形成したこと、各有機層の膜厚を下記のように調整して共振器構造としたこと、および陰極の上層を構成するマグネシウムと銀の共蒸着層の膜厚を 12 nm として透過率を向上させたこと以外は、実施例 1 と同様にして上面発光型の有機電界発光素子を作製した。尚、各有機層の膜厚は、正孔輸送注入層を 40 nm、発光層を 27 nm、電子輸送層を 15 nm とした。

このように、フルオランテン誘導体（FPB）とアリールアントラセン誘導体（ADN）とを用いて発光層が構成された実施例 5 の有機電界発光素子を、実施例 1～4 と同様に、電流密度 12.5 mA / cm<sup>2</sup> で直流電流駆動したところ、輝度 2580 [Cd / m<sup>2</sup>]、色度 (0.285, 0.677)、発光ピーク 533 nm の緑色発光が確認され、共振器構造したことにより実施例 1～4 と比較して緑色の色度が向上していることが確認された。また、駆動電圧は 4.96 V、発光効率は 20.6 [Cd / A]、電力効率は 13.1 [lm / W] であった。特に、反射率の高い Ag 合金（反射層）を陽極に用いたことにより、高い電流効率を得ることができた。また、窒素気流中、初期輝度 1370 [Cd / m<sup>2</sup>] に設定し、この初期輝度からの 1000 時間連続駆動後の輝度の減衰率は 9 % と非常に低い値に抑えられることが確認された。尚、この評価結果は、上記表 1 に合わせて記載した。

＜比較例 3＞

実施例 5 の有機電界発光素子の作製手順において、発光層中における構造式 (F 1) のフルオランテン誘導体からなるゲストに換えて、クマリン 6 :

3-(2-Benzothiazolyl)-7-diethylaminocoumarin を用いたこと、

5 さらに発光層中における構造式 (A 1) のアリールアントラセン誘導体 (ADN) からなるホストに換えて、A 1 q 3 を用いたこと以外は、実施例 5 と同様にして上面発光型の有機電界発光素子を作製した。尚、ゲスト濃度は 1 体積 % とした。

このように、発光層がクマリン 6 と A 1 q 3 とからなる比較例 10 3 の有機電界発光素子を、上記と同様に電流密度 12.5 mA/cm<sup>2</sup> で直流電流駆動したところ、輝度 1780 [Cd/m<sup>2</sup>]、色度 (0.25, 0.68)、発光ピーク 525 nm の緑色発光が確認された。駆動電圧は 5.0 V、発光効率は 14.1 [Cd/A]、電力効率は 8.84 [1 m/W] であった。また、窒素 15 気流中、初期輝度 1310 [Cd/m<sup>2</sup>] に設定し、この初期輝度からの 1000 時間連続駆動後の輝度の減衰率は 23 % と高い値であった。尚、この評価結果は、上記表 1 に合わせて記載した。

#### <実施例 6～13>

20 上述した実施例 1 の有機電界発光素子の作製手順において、発光層中におけるゲストとしてのフルオランテン誘導体を、下記表 2 に示す各構造式の化合物としたこと以外は、実施例 1 と同様にして下面発光型の有機電界発光素子を作製した。尚、発光層中におけるゲスト濃度は、実施例 1 と同様の 5 体積 % とした。

#### <実施例 14>

25 上述した実施例 12 の有機電界発光素子の作製手順において、

発光層中のホストを構造式（A12）としたこと以外は、実施例13と同様にして透過型の有機電界発光素子を作製した。

#### <実施例15>

上述した実施例10の有機電界発光素子の作製手順において、  
5 膜厚が190nmのAg合金（反射層）上に12.5nmのITO透明電極を積層した陽極を形成したこと、各有機層の膜厚を下記のように調整して共振器構造としたこと、および陰極の上層を構成するマグネシウムと銀の共蒸着層の膜厚を12nmとして透過率を向上させたこと以外は、実施例10と同様にして上面発光型の有機電界発光素子を作製した。尚、各有機層の膜厚は、正孔輸送注入層40nm、発光層を27nm、電子輸送層を15nmとした。

表2

	ゲスト構造式	ホスト構造式	輝度 [Cd/m <sup>2</sup> ]	色度 (0.358, 0.598)	ELmax [nm]	電圧 [V]	発光効率 [Cd/A]	電力効率 [lm/W]	減衰率 100h後
実施例1	(F1)	(A1)	2210	(0.358, 0.598)	532	5.33	17.68	10.42	10%
実施例6	(F2)	"	1890	(0.366, 0.595)	532	6.04	15.12	7.86	8%
実施例7	(F3)	"	1850	(0.359, 0.604)	533	5.66	14.80	8.21	9%
実施例8	(F4)	"	1660	(0.400, 0.572)	541	5.30	13.28	9.43	13%
実施例9	(F5)	"	1860	(0.359, 0.604)	533	5.70	14.88	8.21	9%
実施例10	(F9)	"	1970	(0.331, 0.619)	526	5.80	15.76	8.53	7%
実施例11	(F15)	"	839	(0.266, 0.572)	508	5.99	6.72	3.52	17%
実施例12	(F17)	"	950	(0.259, 0.621)	514	5.71	7.60	4.18	20%
実施例13	(F21)	"	1470	(0.329, 0.601)	519	5.81	11.76	6.35	18%
実施例14	(F17)	(A12)	1030	(0.328, 0.606)	522	5.59	8.24	4.63	19%
実施例15	実施例10(F9)の共振器構造		2630	(0.235, 0.699)	523	5.11	21.04	12.93	*7%

\*実施例15の減衰率は1000時間後

## &lt;評価結果&gt;

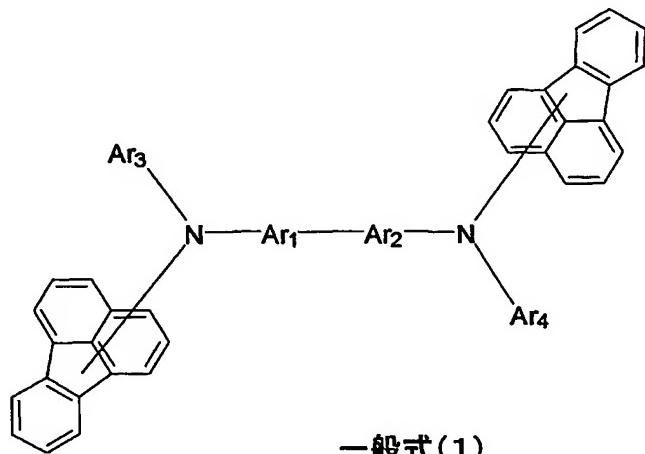
各実施例 6～15 で作製した下面発光型の有機電界発光素子の評価として、実施例 1～5 と同様にこれらの素子を 12.5 mA/cm<sup>2</sup> で直流駆動した場合の発光特性の測定を行い、この結果を上記表 2 に合わせて示した。

表 2 に示した結果から、一般式（1）の具体例である各構造式のフルオランテン誘導体と、アリールアントラセン誘導体（ADN）[構造式（A1）、構造式（A12）]とを用いて発光層を構成した有機電界発光素子であっても、効率の良い発光が得られ、また最大発光波長から緑色発光が得られることが確認された。

特に、このように、フルオランテン誘導体（FPB）とアリールアントラセン誘導体（ADN）とを用いて発光層が構成された実施例 15 の有機電界発光素子を、他の実施例 6～14 と同様に、電流密度 12.5 mA/cm<sup>2</sup> で直流電流駆動したところ、輝度 2630 [Cd/m<sup>2</sup>]、色度 (0.235, 0.699)、発光ピーク 523 nm の緑色発光が確認された。この色度は、特に NTSC の緑色発光の標準値 (0.210, 0.710) に近い純度の高い緑色が得られた。また、駆動電圧は 5.11 V、発光効率は 21.04 [Cd/A]、電力効率は 12.93 [lm/W] であった。特に、反射率の高い Ag 合金（反射層）を陽極に用いたことにより、高い電流効率を得ることができた。また、窒素気流中、初期輝度 1370 [Cd/m<sup>2</sup>] に設定し、この初期輝度からの 1000 時間連続駆動後の輝度の減衰率は 7% と非常に低い値に抑えられることが確認された。

## 請求の範囲

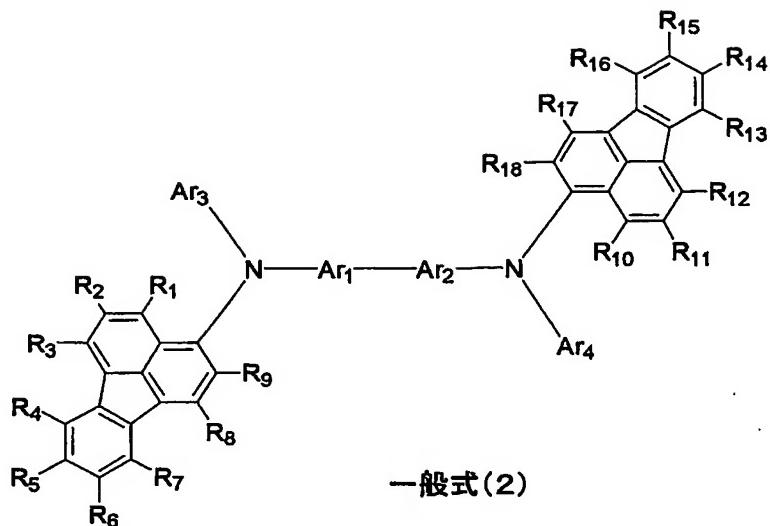
1. 陽極と陰極の間に少なくとも発光層を挟持してなる有機電界発光素子において、前記発光層が、下記一般式（1）で表されるフルオランテン誘導体を含有し、且つ緑色に発光することを特徴とする有機電界発光素子。



ただし、一般式（1）中における2つのフルオランテンの各置換部位は、それぞれ独立に水素、炭素原子数6以下のアルキル基、炭素原子数6以下のアルコキシ基、または炭素原子数12以下のアリール基で置換されても良く、 $Ar_1$ および $Ar_2$ は、それぞれ独立に炭素原子数22以下のアリーレン基を示し、 $Ar_3$ および $Ar_4$ は、それぞれ独立に炭素原子数16以下のアリール基を示し、前記各アリール基およびアリーレン基の1つまたは複数の水素は、炭素原子数6以下のアルキル基またはアルコキシ基でそれ置換されていても良い。

2. 請求の範囲第1項記載の有機電界発光素子において、前記フルオランテン誘導体は、下記一般式（2）で示されることを特

徴とする有機電界発光素子。



ただし、一般式(2)中における2つのフルオランテンの各置換部位R<sub>1</sub>～R<sub>18</sub>は、それぞれ独立に水素、炭素原子数6以下のアルキル基、炭素原子数6以下のアルコキシ基、または炭素原子数12以下のアリール基を示し、当該各アリール基の1つまたは複数の水素は、炭素原子数6以下のアルキル基またはアルコキシ基でそれぞれ置換されていても良い。

3. 請求の範囲第1項記載の有機電界発光素子において、前記一般式(1)中、Ar<sub>1</sub>およびAr<sub>2</sub>は、それぞれ独立に炭素原子数14以下のアリーレン基を示し、前記一般式(1)中、Ar<sub>3</sub>およびAr<sub>4</sub>は、それぞれ独立に炭素原子数14以下のアリール基を示すことを特徴とする有機電界発光素子。

4. 請求の範囲第3項記載の有機電界発光素子において、前記フルオランテン誘導体のアリール基およびアリーレン基は、それがベンゼン、ナフタレン、アントラセン、およびビフェニルのうちの1つから誘導されることを特徴とする有機電界発光素

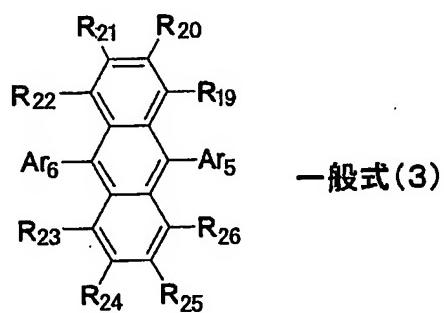
子。

5. 請求の範囲第1項記載の有機電界発光素子において、前記発光層中の前記フルオランテン誘導体の濃度は、50体積%よりも低いことを特徴とする有機電界発光素子。

5 6. 請求の範囲第1項記載の有機電界発光素子において、前記発光層には、前記フルオランテン誘導体の吸収スペクトルに対して、蛍光スペクトルが重なりを有する有機材料が含有されていることを特徴とする有機電界発光素子。

7. 請求の範囲第6項記載の有機電界発光素子において、前記  
10 蛍光スペクトルが重なりを有する有機材料は、アリールアントラセン誘導体からなることを特徴とする有機電界発光素子。

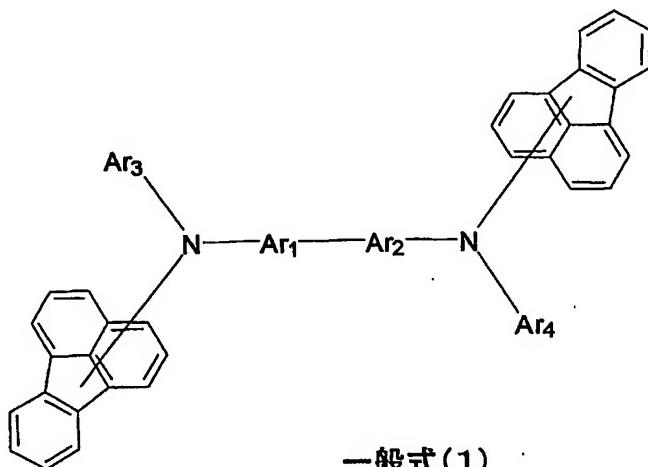
8. 請求の範囲第7項記載の有機電界発光素子において、前記アリールアントラセン誘導体は、下記一般式(3)で示されることを特徴とする有機電界発光素子。



15 ただし、一般式(3)中、R<sub>19</sub>～R<sub>26</sub>は、それぞれ独立に水素、炭素原子数6以下のアルキル基またはアルコキシ基を示し、Ar<sub>5</sub>およびAr<sub>6</sub>は、それぞれ独立に炭素原子数60以下のアリール基または環集合アリール基を示し、これらのアリール基または環集合アリール基の1つまたは複数の水素は、炭素原子数1  
20 2以下のアルキル基、アルコキシ基、炭素原子数60以下の置換

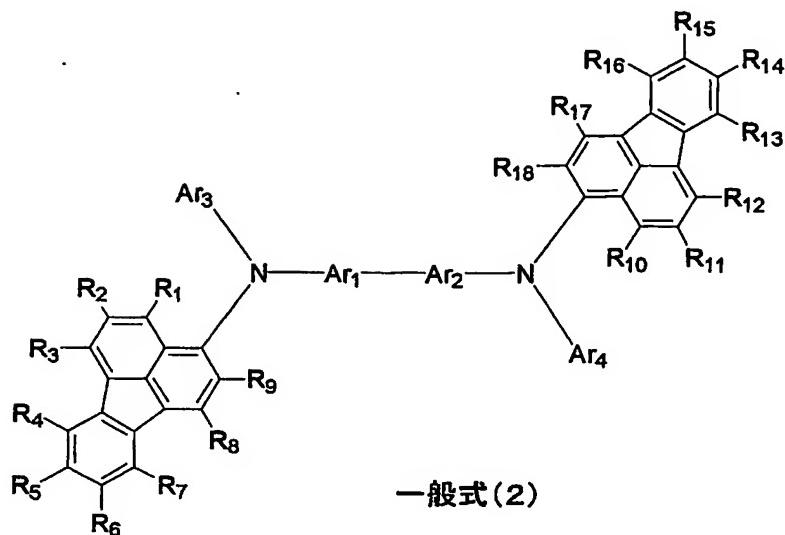
または無置換のエテニル基で置換されていてもよい。

9. 陽極と陰極の間に少なくとも発光層を挟持してなる有機電界発光素子を、基板上に複数配列形成してなる表示装置において、前記発光層が、下記一般式（1）で表されるフルオランテン誘導体を含有することを特徴とする表示装置。



- ただし、一般式（1）中における2つのフルオランテンの各置換部位は、それぞれ独立に水素、炭素原子数6以下のアルキル基、炭素原子数6以下のアルコキシ基、または炭素原子数12以下のアリール基で置換されても良く、Ar<sub>1</sub>およびAr<sub>2</sub>は、それぞれ独立に炭素原子数22以下のアリーレン基を示し、Ar<sub>3</sub>およびAr<sub>4</sub>は、それぞれ独立に炭素原子数16以下のアリール基を示し、前記各アリール基およびアリーレン基の1つまたは複数の水素は、炭素原子数6以下のアルキル基またはアルコキシ基でそれぞれ置換されていても良い。

10. 請求の範囲第9項記載の表示装置において、前記フルオランテン誘導体は、下記一般式（2）で示されることを特徴とする表示装置。



ただし、一般式（2）中における2つのフルオランテンの各置換部位R<sub>1</sub>～R<sub>18</sub>は、それぞれ独立に水素、炭素原子数6以下のアルキル基、炭素原子数6以下のアルコキシ基、または炭素原子数12以下のアリール基を示し、当該各アリール基の1つまたは複数の水素は、炭素原子数6以下のアルキル基またはアルコキシ基でそれぞれ置換されていても良い。

11. 請求の範囲第9項記載の表示装置において、前記一般式（1）中、Ar<sub>1</sub>およびAr<sub>2</sub>は、それぞれ独立に炭素原子数14以下のアリーレン基を示し、前記一般式（1）中、Ar<sub>3</sub>およびAr<sub>4</sub>は、それぞれ独立に炭素原子数14以下のアリール基を示すことを特徴とする表示装置。

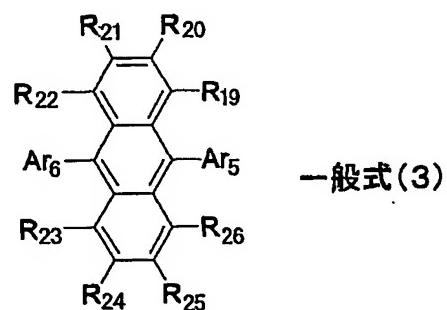
12. 請求の範囲第11項記載の表示装置において、前記フルオランテン誘導体のアリール基およびアリーレン基は、それぞれがベンゼン、ナフタレン、アントラセン、およびピフェニルのうちの1つから誘導されることを特徴とする表示装置。

13. 請求の範囲第9項記載の表示装置において、前記発光層中の前記フルオランテン誘導体の濃度は、50体積%よりも低いことを特徴とする表示装置。

14. 請求の範囲第9項記載の表示装置において、前記発光層には、前記フルオランテン誘導体の吸収スペクトルに対して、蛍光スペクトルが重なりを有する有機材料が含有されていることを特徴とする表示装置。

15. 請求の範囲第14項記載の表示装置において、前記蛍光スペクトルが重なりを有する有機材料は、アリールアントラセン誘導体からなることを特徴とする表示装置。

16. 請求の範囲第15項記載の表示装置において、前記アリールアントラセン誘導体は、下記一般式(3)で示されることを特徴とする表示装置。

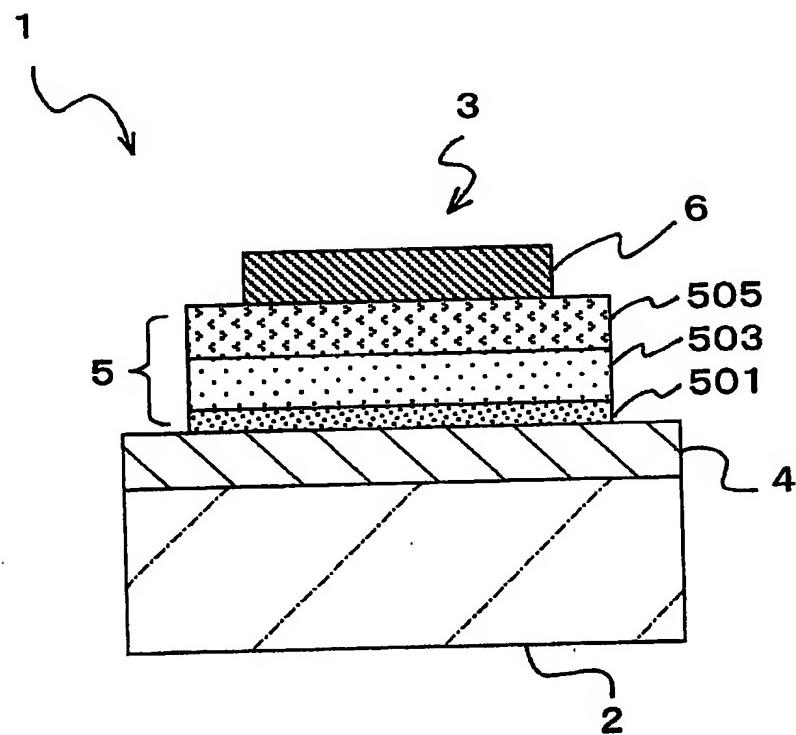


15 ただし、一般式(3)中、R<sub>19</sub>～R<sub>26</sub>は、それぞれ独立に水素、炭素原子数6以下のアルキル基またはアルコキシ基を示し、Ar<sub>5</sub>およびAr<sub>6</sub>は、それぞれ独立に炭素原子数60以下のアリール基または環集合アリール基を示し、これらのアリール基または環集合アリール基の1つまたは複数の水素は、炭素原子数12以下のアルキル基、アルコキシ基、炭素原子数60以下の置換または無置換のエテニル基で置換されていてもよい。

17. 請求の範囲第9項記載の表示装置において、前記有機電界発光素子が、緑色発光素子として複数の画素のうちの一部の画素に設けられていることを特徴とする表示装置。

1/1

Fig.1



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/016794

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl' C09K11/06, H05B33/14

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl' C09K11/06, H05B33/14

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
CA FILE (STN), REGISTRY FILE (STN)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 5-234681 A (Eastman Kodak Co.), 10 September, 1993 (10.09.93), & US 5061569 A & EP 468528 A1	1-5, 9-13, 17 6-8, 14-16
X Y	JP 8-199162 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 06 August, 1996 (06.08.96), Claims; Par. Nos. [0014] to [0017] (Family: none)	1-5, 9-13, 17 6-8, 14-16
Y	JP 2002-8867 A (TDK Corp.), 11 January, 2002 (11.01.02), Claims; Par. Nos. [0023] to [0026], [0195] to [0242] & EP 1148109 A2 & US 2003/0027016 A1	6-8, 14-16

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T"	later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&"	document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means		
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		

Date of the actual completion of the international search  
18 January, 2005 (18.01.05)Date of mailing of the international search report  
08 February, 2005 (08.02.05)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2004/016794

**C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	JP 2004-262761 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 24 September, 2004 (24.09.04), Claims; Par. Nos. [0012], [0015] & WO 2004/63142 A1	1-4, 9-12, 17

## A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. C17 C09K11/06, H05B33/14

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. C17 C09K11/06, H05B33/14

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

## 国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

CA FILE(STN)、REGISTRY FILE(STN)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	J P 5-234681 A (イーストマン コダック カンパニー) 1993.09.10 & US 5061569 A & EP 468528 A1	1-5, 9-13, 17 6-8, 14-16
X Y	J P 8-199162 A (出光興産株式会社) 1996.08.06、特 許請求の範囲、【0014】-【0017】(ファミーなし)	1-5, 9-13, 17 6-8, 14-16
Y	J P 2002-8867 A (ティーディーケイ株式会社) 2002.01.11 特許請求の範囲、【0023】-【0026】、【0195】-【0242】、&EP 11 48109 A2 & US 2003/0027016 A1	6-8, 14-16

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す)
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

## 国際調査を完了した日

18. 01. 2005

## 国際調査報告の発送日

08.02.2005

## 国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官(権限のある職員)

渡辺 陽子

4V 9279

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
P X	JP 2004-262761 A (出光興産株式会社) 2004.09. 24、特許請求の範囲, 【0012】 , 【0015】 & WO 2004/63142 A1	1-4, 9-12, 17